JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 Date of Application:

2003年 6月30日

TRESP 1 9 AUG 2004

WIPO

PCT

Application Number:

特願2003-187541

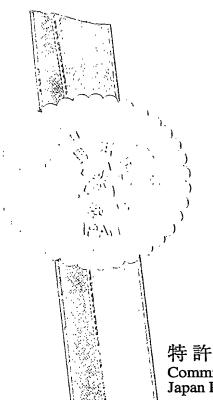
[ST. 10/C]:

[JP2003-187541]

願 人

富士電機画像デバイス株式会社

出 Applicant(s):

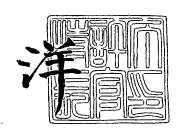


特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office

PRIORITY

COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

8月 2004年 5 日



【書類名】

特許願

【整理番号】

03P00436

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】 G03G 5/05

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号 富士電機株式

会社内

【氏名】

関根 伸行

【発明者】

【住所又は居所】

神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号 富士電機株式

会社内

【氏名】

黒田 昌美

【発明者】

【住所又は居所】 長野県松本市筑摩四丁目18番1号 富士電機画像デバ

イス株式会社内

【氏名】

大倉 健一

【発明者】

【住所又は居所】 長野県松本市筑摩四丁目18番1号 富士電機画像デバ

イス株式会社内

【氏名】

竹嶋 基浩

【特許出願人】

【識別番号】 399045008

【氏名又は名称】 富士電機画像デバイス株式会社

【代理人】

【識別番号】 100096714

【弁理士】

【氏名又は名称】 本多 一郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100096161

【弁理士】

【氏名又は名称】 本多 敬子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 026516

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9908305

【プルーフの要否】 要



【書類名】

明細書

【発明の名称】

キノン系化合物

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式(I)、

$$\begin{array}{c}
R^{1} \\
R^{2} \\
R^{2}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
N = N - R^{5} \\
X \\
(R^{6})_{n}
\end{array}$$
(I)

(式 (I) 中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 は、同一または異なって、水素原子、置換基を有してもよい炭素数 $1\sim 12$ のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、 R^5 は、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、 R^6 は、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、Xは、硫黄原子または酸素原子を表し、 R^6 は、ハロゲン原子、炭素数 R^6 で表表し、 R^6 のアルコキシ基、炭素数 R^6 のアルキルを、テリール基または複素環基を表す)で表される構造を有することを特徴とするキノン系化合物。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明はキノン系化合物に関し、詳しくは、電子写真用感光体(以下、単に「感光体」とも称する)や有機エレクトロルミネッセンス(EL)デバイス等における電子輸送物質として有用な新規キノン系化合物に関する。

[0002]

【従来の技術】

近年、有機化合物を用いた電子デバイスの1つとして、有機光導電材料を用いたいわゆる有機感光体が、無公害、低コスト、材料選択の自由度より感光体特性



を様々に設計できるなどの観点から、数多く提案され実用化されている。

[0003]

有機感光体の感光層は、主として有機光導電材料を樹脂中に分散させた層からなり、電荷発生物質を樹脂中に分散させた層(電荷発生層)と電荷輸送物質を樹脂中に分散させた層(電荷輸送層)とを積層させた積層型構造や、電荷発生物質と電荷輸送物質とを併せて樹脂中に分散させた単一の層からなる単層型構造などが数多く提案されている。

[0004]

中でも、感光層として、電荷発生層の上に電荷輸送層を積層させた機能分離積層型の感光体は、感光体特性や耐久性に優れるため、広く実用化されている。この機能分離積層型感光体に設けられている電荷輸送層には、通常、電荷輸送物質として正孔輸送物質が用いられるため、この感光体は負帯電プロセスで作動する電子写真装置に使用される。しかし、負帯電プロセスに使用される負極性コロナ放電は、正極性のそれに比して不安定であって、かつ、発生オゾン量が多いため、感光体への悪影響や、使用環境への悪影響が問題となっている。これらの問題点を解決するためには、正帯電プロセスで使用できる有機感光体が有効である。

[0005]

ところで、前述のような耐久性に優れた感光体を正帯電プロセス用でかつ高感度にするためには、電子輸送機能に優れた物質を用いる必要がある。このような物質やそれを用いた感光体は、これまでにも数多く提案されてきている。例えば、特許文献1~特許文献14、非特許文献1~非特許文献4等において、数多くの電子輸送物質やこれを用いた電子写真用感光体が提案、記載され、注目を浴びるようになってきている。また、単層型感光層中に、例えば、特許文献15~特許文献19等に記載されているような正孔輸送物質および電子輸送物質を組み合わせて用いた感光体が高感度であるとして着目され、一部実用化されている。

[0006]

また、本発明者らも、より優れた特性を有する感光体を目指して、電子輸送機能を有する物質を含有する感光体を種々提案している(例えば、特許文献20~特許文献24等に記載)。



[0007]

また、最近、ディスプレー等への応用が期待されている、有機光導電物質を用いた発光デバイスとして有機ELがあるが、この有機ELについても、有機材料の改良に関し数多くの提案がなされており、一部実用化されている。

[0008]

有機ELの最も簡単な構造は、有機化合物である発光材料を含む発光層を電極により挟んだ構造であり、電極に電流を流すことにより発光層中に電極から電子と正孔が注入されて、発光層中で励起子が形成され、再結合が起こって発光が生ずる。また、電極から注入された電子や正孔を効率よく発光層に注入させることなどを目的として、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層等の機能層を発光層と共に積層した構造も提案されており、これらのうち電子輸送層や電子注入層には、電子輸送機能を有する有機化合物が用いられている(非特許文献5等を参照)。

[0009]

【特許文献1】

特開平1-206349号公報

【特許文献2】

特開平4-360148号公報

【特許文献3】

特開平3-290666号公報

【特許文献4】

特開平5-92936号公報

【特許文献5】

特開平9-151157号公報、

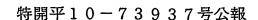
【特許文献6】

特開平5-279582号公報

【特許文献7】

特開平7-179775号公報

【特許文献8】



【特許文献9】

特開平4-338760号公報

【特許文献10】

特開平1-230054号公報

【特許文献11】

特開平8-278643号公報

【特許文献12】

特開平9-190002号公報

【特許文献13】

特開平9-190003号公報

【特許文献14】

特開2001-222122号公報

【特許文献15】

特開平5-150481号公報

【特許文献16】

特開平6-130688号公報

【特許文献17】

特開平9-281728号公報

【特許文献18】

特開平9-281729号公報

【特許文献19】

特開平10-239874号公報

【特許文献20】

特開2000-75520号公報

【特許文献21】

特開2000-199979号公報

【特許文献22】

特開2000-143607号公報



【特許文献23】

特開2001-142239号公報

【特許文献24】

特開2002-278112号公報

【非特許文献1】

電子写真学会誌 Vol. 30, p266~273 (1991)

【非特許文献2】

Pan-Pacific Imaging Conference/ Japan Hardcopy≡98 July 15~17, 1998 JA HALL, Tokyo, Japan 予稿集p207~210

【非特許文献3】

」 Japan Hardcopy≡97 論文集1997年7月9日、 10日、11日 JAホール(東京・大手町)p21~24

【非特許文献4】

Japan Hardcopy≡92 論文集1992年7月6日、 7日、8日 JAホール (東京・大手町) p173~176

【非特許文献5】

応用物理 第70巻 第12号(2001) p1419~1425 「 高効率有機EL材料の開発動向(大森)」

[0010]

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、電子輸送機能を有する物質として既知であるジフェノキノン化合物やスチルベンキノン化合物は、電子写真用感光体に用いるには、感度や残留電位といった電気特性が十分満足できるものではなかった。そのため、より優れた電気特性を有する電子輸送物質が望まれていた。また、有機EL用途においても、従来よりも更に高輝度で、かつ、発光効率を向上することのできる高性能の電子輸送物質が求められていた。

[0011]

そこで本発明の目的は、電子写真用感光体や有機EL用途に有用な電子輸送機



能に優れた化合物を提供することにある。

[0012]

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、本発明のキノン系化合物は、下記一般式(I)、

$$\begin{array}{c}
R^{1} \\
R^{2} \\
R^{2}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
N = N - R^{5} \\
X \\
(R^{6})_{n}
\end{array}$$
(I)

(式(I)中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 は、同一または異なって、水素原子、置換基を有してもよい炭素数 $1\sim 12$ のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、 R^5 は、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、 R^6 は、ハロゲン原子、置換基を有してもよい炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、Xは、硫黄原子または酸素原子を表し、 R^4 0のアルコキシ基、炭素数 R^4 1 R^4 1 R^4 2 R^5 3 R^4 3 R^4 4 R^5 4 R^5 5 R^5 6 R^5 6 R^5 6 R^5 7 R^5 7 R^5 8 R^5 9 R^5 9

[0013]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の具体的な実施の形態につき詳細に説明する。

本発明のキノン系化合物は、例えば、下記反応式(1)、(2)に従い合成することができる。即ち、まず、下記反応式(1)に示すように、構造式(B')で示される化合物から構造式(B)で示される化合物を合成する。次いで、下記反応式(2)に示すように、構造式(A)で示される化合物と、この構造式(B)で示される化合物とを、適当な有機金属試薬(例えば、マグネシウムなど)で反応させ、その後、保護基(TMS:トリメチルシリル基)を取り去ることにより、構造式(C)で示される化合物を合成する。さらに、これと構造式(D)で



示される化合物との脱水縮合後、適当な触媒(例えば、二酸化鉛(PbO_2)など)で酸化することにより、一般式(I)で示される化合物を合成することができる。なお、下記反応式(2)中の「TBAF」はフッ化テトラブチルアンモニウムを表す。

反応式(1)

$$Cl \underbrace{\begin{pmatrix} (R^6)_n & CH_3ONHCH_3 \\ Pyridine & Pyridine \end{pmatrix}}_{O} \underbrace{\begin{pmatrix} CH_3 & (R^6)_n \\ N & N \\ N & N \end{pmatrix}}_{O} \underbrace{\begin{pmatrix} CH_3 & (R^6)_n \\ N & N \end{pmatrix}}_{O}$$
(B')

反応式(2)

TMSO
$$\xrightarrow{R^4}$$
 \xrightarrow{ii} $\xrightarrow{CH_3}$ $\xrightarrow{(R^6)_n}$ $\xrightarrow{R^2}$ $\xrightarrow{R^4}$ $\xrightarrow{K^3}$ $\xrightarrow{R^3}$ $\xrightarrow{R^3}$ $\xrightarrow{R^4}$ $\xrightarrow{K^3}$ $\xrightarrow{K^4}$ $\xrightarrow{K^3}$ $\xrightarrow{K^4}$ \xrightarrow

[0014]

前記一般式(I)で示される化合物の具体例を以下に示すが、本発明においては、これらの化合物に限定されるものではない。なお、下記の具体例中の置換基

は、t-ブチル基を表す。



[0015]

$$O \longrightarrow N = N - CI$$

$$(I-3)$$

$$O \longrightarrow N = N - C1$$

$$O \longrightarrow S$$

$$C1$$

$$C1$$

$$C1$$

$$0 \xrightarrow{N=N} C1$$

$$C1$$

$$C1$$

$$C1-9$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow S$$

$$CI$$

$$O \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow I$$

$$O$$

$$0 \longrightarrow N = N - F$$

$$S \qquad (I-15)$$

$$0 \xrightarrow{N=N} C1$$
 (I-4)

$$O \longrightarrow N = N - C1$$

$$(I-6)$$

$$O \longrightarrow N = N$$

$$O \longrightarrow S$$

$$C1$$

$$C1$$

$$(1-8)$$

$$0 \xrightarrow{N=N-Cl} Cl$$

$$Cl$$

$$Cl$$

$$(I-10)$$

$$0 \longrightarrow F$$

$$N=N-F$$

$$(I-16)$$



[0016]

$$0 \longrightarrow F F F$$

$$S F F F$$

$$(I-17)$$

$$0 \xrightarrow{H_3C} N=N \xrightarrow{(I-19)}$$

$$0 \longrightarrow N = N - OCH_3$$

$$S \qquad (I-23)$$

$$0 \xrightarrow{N=N-N} NO_2$$
 (I-25)

$$\begin{array}{c|c}
O_2N \\
N=N-NO_2 \\
S \\
(I-27)\end{array}$$

$$0 \longrightarrow N = N \longrightarrow (I-31)$$

$$0 \longrightarrow F F F$$
 (I-18)

$$0 = N = N - (I-24)$$

$$0 \longrightarrow N = N \longrightarrow NO_2$$

$$S \qquad (I-26)$$

$$O \longrightarrow N = N - CF_3$$

$$(I-28)$$

$$O = N = N - N$$

$$C_1 \qquad (I-32)$$



[0017]

[0018]

$$0 \xrightarrow{N=N-} S$$

$$B_r$$
(I-49)

$$O = N = N - Br \qquad (I-53)$$

$$O = Br$$

$$\begin{array}{c} Cl \\ N=N \end{array} \qquad (I-55)$$

$$O \longrightarrow N = N - CI \qquad (I-57)$$

$$\begin{array}{c|c} & \text{Cl} & \\ & \text{N=N-Cl} \\ & \text{S Cl} & \\ & \text{Cl} & \end{array}$$

$$O \longrightarrow N = N - O_2$$

$$S = C1$$

$$(I-61)$$

$$H_3C$$
 O
 H_3C
 $N=N$
 CH_3
 CI
 CI
 CI

$$0 \longrightarrow N = N - C - Br$$

$$S = Br$$

$$(I-50)$$

$$0 \xrightarrow{F} \\ N=N-$$

$$S \\ Br$$

$$(I-52)$$

$$0 \longrightarrow N = N - (I-54)$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow CI$$

$$CI$$

$$(I-56)$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow CI$$

$$CI \longrightarrow CI$$

$$H_3C$$
 O
 $N=N S$
 Cl
 $(I-62)$

$$\begin{array}{c} H_3C \\ O \\ \hline \\ H_3C \\ \end{array} \begin{array}{c} N = N - Cl \\ \hline \\ Cl \\ \end{array} \hspace{1cm} (I-64)$$

[0019]

$$\begin{array}{c}
\text{Cl} \\
\text{N=N-}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
\text{Cl} \\
\text{CH}_{3}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
\text{Cl} \\
\text{CH}_{3}
\end{array}$$

$$O = \begin{array}{c} H_3C \\ N=N \end{array} \qquad (I-69)$$

$$O = \begin{array}{c} N = N - CH_3 \\ S \\ CH_3 \end{array}$$
 (I-71)

$$0 \xrightarrow{N=N-} S$$

$$H_3C \xrightarrow{S}$$

$$H_3C$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow CH_3$$

$$H_3C \longrightarrow S$$

$$H_3C \longrightarrow S$$

$$(I-75)$$

$$0 \longrightarrow N = N \longrightarrow (I-77)$$

$$O \longrightarrow N=N- \longrightarrow Br$$

$$CH_3$$
(I-66)

$$O = \begin{array}{c} N = N - C_1 \\ S \\ CH_3 \end{array}$$
 (I-68)

$$O = \begin{array}{c} CH_{8} \\ CH_{8} \end{array} \qquad (I-70)$$

$$O \longrightarrow N = N - OCH_3$$

$$CH_3 \qquad (I-72)$$

$$O = N = N - C1$$

$$H_3C = S$$

$$H_3C = S$$

$$H_3C = S$$

$$0 \xrightarrow{N=N-Cl} S$$
 (I-78)

$$\begin{array}{c}
\text{CI} \\
\text{N=N-} \\
\text{S}
\end{array}$$
(I-80)

[0020]

(I-83)

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow (I-85)$$

$$O \longrightarrow O \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow C1$$

$$C1$$

$$C1$$

$$C1$$

$$C1$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow CI$$

$$O \longrightarrow CI$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow F$$

$$0 \longrightarrow 0 \qquad (I-95)$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow C1$$
 (I-90)

[0021]

$$0 \longrightarrow F F$$

$$(I-97)$$

$$0 \longrightarrow \begin{array}{c} H_3C \\ N=N- \\ O \end{array}$$
 (I-99)

$$O \longrightarrow N = N - CH_3 \qquad (I-101)$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow NO_2$$
 (I-105)

$$0 \longrightarrow N = N$$
 (I-111)

$$O \longrightarrow F F F$$
 (I-98)

$$0 \xrightarrow{N=N} 0_2 N$$
 (I-104)

$$0 \longrightarrow N = N - NO_2$$

$$(I-106)$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow CF_3 \qquad (I-108)$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N \qquad (I-112)$$

[0022]

$$0 = \begin{array}{c} N = N - CI \\ O \\ O \\ \end{array}$$
 (I-121)

$$0 \longrightarrow N = N - Cl$$
 (I-123)

$$\begin{array}{c}
H_3C & CI \\
O & N=N \\
H_3C & O
\end{array} (I-114)$$

$$\begin{array}{c} H_3C \\ O \\ H_3C \end{array}$$

$$\begin{array}{c} H_3C \\ O \\ H_3C \end{array} \qquad \begin{array}{c} N = N - \\ O \\ \end{array} \qquad \begin{array}{c} CH_3 \\ \end{array} \qquad (I-120)$$

$$\begin{array}{c}
CI \\
N=N-\\
\end{array}$$
(I-122)

$$O \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow CF_3$$
 (I-124)

(I-130)

[0023]

$$0 \longrightarrow N=N-$$

$$(I-129)$$

$$0 \longrightarrow N=N-$$

$$0 \longrightarrow B_{1}$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow Cl$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N \longrightarrow N$$

$$0 \longrightarrow \begin{array}{c} N = N - \\ O \longrightarrow \\ B_{r} \end{array} \qquad (I-133) \qquad 0 \longrightarrow \begin{array}{c} N = N - \\ O \longrightarrow \\ C_{l} \end{array} \qquad (I-134)$$

$$O = \begin{pmatrix} CI \\ N=N \end{pmatrix} \qquad (I-135) \qquad O = \begin{pmatrix} CI \\ O \\ CI \end{pmatrix} \qquad (I-136)$$

$$O \longrightarrow V \longrightarrow Cl$$

$$O \longrightarrow V \longrightarrow Cl$$

$$O \longrightarrow Cl$$

$$O$$

$$O \longrightarrow \begin{array}{c} C_{1} \\ N=N- \\ O \xrightarrow{C_{1}} C_{1} \\ C_{1} \end{array} \qquad (I-139) \qquad O \longrightarrow \begin{array}{c} N=N- \\ O \xrightarrow{C_{1}} C_{1} \\ C_{1} \end{array} \qquad (I-140)$$

$$O = \begin{array}{c} N = N - \\ O \\ Cl \end{array} \qquad (I-141) \qquad O = \begin{array}{c} H_3C \\ O \\ H_3C \end{array} \qquad (I-142)$$

[0024]

$$0 \xrightarrow{N=N-Cl} (I-147)$$

$$Cl$$

$$O$$

$$CH_3$$

$$0 \xrightarrow{\text{H}_3\text{C}} \text{(I-149)}$$

$$0 \longrightarrow N \longrightarrow N$$

$$H_3C$$

$$H_3C$$

$$(I-153)$$

$$O \longrightarrow N \longrightarrow CH_3$$

$$H_3C \longrightarrow H_3C$$

$$(I-155)$$

[0025]

$$0 \xrightarrow{N=N-} Br \qquad (I-146)$$

$$CH_3$$

$$0 \xrightarrow{N=N-Cl} Cl$$

$$CH_8$$

$$(I-148)$$

$$O = \begin{array}{c} CH_3 \\ O \\ CH_3 \end{array} \qquad (I-150)$$

$$\begin{array}{c|c} & & \\ & &$$

$$O \longrightarrow \begin{array}{c} N = N - Cl \\ H_3C \longrightarrow O \\ H_3C \longrightarrow O \end{array}$$
 (I-154)

$$O \longrightarrow N = N$$

$$O \longrightarrow O$$

$$S \longrightarrow (I-160)$$

前記一般式(I)で示される本発明のキノン系化合物は、優れた電子輸送性を 有することから、いわゆる電子輸送物質として有用であり、特に、電子写真用感 光体の感光層材料、および、有機ELの電子輸送層等の機能層材料として好適に 用いることができるものである。

[0026]

【実施例】

以下に、本発明を実施例に基づき説明する。

合成実施例1:前記具体例(I-3)の化合物の合成

下記反応式(1-1)、(2-1)に従い、前記具体例(I-3)の化合物を合成した。

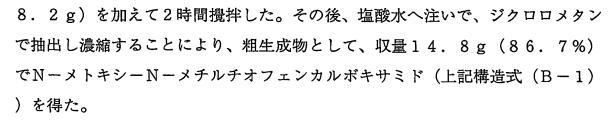
反応式(1-1)

反応式(2-1)

TMSO
$$\xrightarrow{i)}$$
 $\xrightarrow{i)}$ $\xrightarrow{ii)}$ $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} \xrightarrow{O} $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} \xrightarrow{O} \xrightarrow{O} $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} $\xrightarrow{O$

[0027]

①2ーテノイルクロリド(上記構造式(B'-1))100mmol(14.7g)、N, Oージメチルヒドロキシアミン塩酸塩110mmol(10.7g)のジクロロメタン溶液に、室温、窒素雰囲気下で、ピリジン230mmol(1



[0028]

②次に、上記構造式(B-1)で示される化合物のテトラヒドロフラン(THF)溶液に、マグネシウム $7.8\,\mathrm{mm}\,\mathrm{o}\,1$ ($1...9\,\mathrm{g}$)と、4-7ロモー 2...6 ージー t-7チルー 1-(トリメチルシロキシ)ベンゼン(A-1)60 mm o 1($2.1..4\,\mathrm{g}$)のTHF溶液より調製した $G\,\mathrm{r}\,\mathrm{i}\,\mathrm{g}\,\mathrm{n}\,\mathrm{a}\,\mathrm{r}\,\mathrm{d}$ 試薬を滴下して、室温で3時間攪拌した。その後、少量の $1\,\mathrm{N}$ 塩酸水溶液を加えて反応を終了した。さらに、 $1...0\,\mathrm{M}\,\mathrm{J}\,\mathrm{y}\,\mathrm{t}$ 化テトラブチルアンモニウムTHF溶液(TBAF)60 mm o 1($6.0\,\mathrm{m}\,\mathrm{l}$ 1)を加えて攪拌後、塩酸水へ注いで、ジクロロメタンで抽出し濃縮することにより、粗生成物として収量 $6...5\,\mathrm{g}$ ($6...8\,\mathrm{l}$ 2)で構造式(C-1)で示される化合物を得た。

[0029]

③さらに、上記構造式(C-1)で示される化合物 15 mm o 1 (4.7 g)、4-クロロフェニルヒドラジン塩酸塩(上記構造式(D-1))30 mm o 1 (5.4 g)をピリジンに溶解して、加熱還流した。反応液を塩酸水に注いで、ジクロロメタンで抽出し濃縮した。その後、カラムクロマトグラフィーで精製することにより、粗生成物を得た。

[0030]

④上記粗生成物のクロロホルムに、室温で、二酸化鉛(PbO_2)20mmo1 (4.8g)を加えて攪拌した。残渣をろ別後、反応液を濃縮して得られた固形分をヘキサンで再結晶することにより、前記構造式 (I-3)で表される化合物を得た。収量 3.4g (収率51.4%)、MS m/z 438 (M+)であった。なお、全収率は30.3%であった。この具体例 (I-3) の化合物のIRスペクトルを図1に、IH-NMRスペクトルを図2に、夫々示す。

[0031]

<u>合成実施例2:前記具体例(I-83)の化合物の合成</u>

下記反応式(1-2)、(2-2)に従い、前記具体例(I-83)の化合物を合成した。

反応式(1-2)

反応式(2-2)

TMSO
$$\xrightarrow{i)}$$
 $\xrightarrow{i)}$ \xrightarrow{Mg} $\xrightarrow{ii)}$ $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} \xrightarrow{O} $\xrightarrow{CH_3}$ \xrightarrow{O} $\xrightarrow{$

上記反応式に示すように、上記合成実施例 1 の 2 - テノイルクロリド(前記構造式(B' - 1))を 2 - フロイルクロリド(上記構造式(1 - 1 と同様の操作を行って、前記構造式(1 - 1 と同様の操作を行って、前記構造式(1 - 1 と同様の操作を行って、前記構造式(1 - 1 と可能の 1 と同様の操作を行って、前記構造式(1 - 1 と可能の 1 と同様の 1

[0033]



ゼン(前記式(A-1))は、例えば、前記特許文献 1 4 等に記載の公知の方法によって合成することができる。

[0034]

感光体応用例1

電気特性評価用としては板状感光体、印字評価用としてはドラム状感光体(30mm)を、夫々作製した。

アルミニウム板およびアルミニウム素管上に、夫々以下の組成の下引き層溶液を浸漬塗工し、100で60分乾燥して、膜厚 0.3μ mの下引き層を形成した。尚、以下、「部」は重量部を表す。

可溶性ナイロン (アミランCM8000:東レ (株) 製)

3 部

メタノール/塩化メチレン混合溶剤 (5/5)

9 7 部

[0035]

次に、この下引き層上に、以下の組成の単層型感光層分散液を浸漬塗工し、100℃で60分乾燥して、膜厚30μmの単層型感光層を形成した。

電荷発生物質:X型無金属フタロシアニン

0.2部

(特開2001-228637号公報中の図2参照)

正孔輸送物質:下記構造式(HT1-101)、

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3\text{C} \\ \text{N-CH=CH-CH=CH-CH=CH-CH}_3 \\ \text{H}_3\text{C} \\ \end{array} \\ \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \\ \end{array}$$

で示されるスチリル化合物

8部

(特開2000-314969号公報中の(HT1-101))

電子輸送物質:前記式(I-3)で示される化合物「合成実施例1]

5部

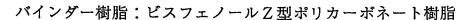
酸化防止剤:3.5-ジーtert-4-ヒドロキシトルエン(BHT)

(東京化成工業(株)製)

1部

シリコーンオイル(KF-50:信越化学工業(株)製)

0.01部



(パンライトTS2050:帝人化成(株)製)

7部

(特開2000-314969号公報中の(BD1-1))

塩化メチレン

100部

以上のようにして電子写真用感光体を作製した。

[0036]

感光体応用例 2

感光体応用例1で使用した感光層分散液の組成のうち、電子輸送物質としての前記式(I-3)で示される化合物5部を、電子輸送物質としての前記式(I-83)[合成実施例2]で示される化合物5部に代えた以外は感光体応用例1と同様にして、感光体を作製した。

[0037]

感光体応用例1、2の評価

電気特性評価として、板状感光体を用いて、(株)川口電機製作所製 静電複写紙試験装置EPA-8100にて評価を行った。

保持率 Vk_5 (%) = (V_5/V_0) × 100

V0:帯電直後の表面電位

V5:5秒後(露光開始時)の表面電位

[0038]

次に、同様に表面電位を+600 Vにして、ハロゲンランプの光をフィルターにて 780 n mに分光した 1.0 μ W/c m 2 の単色光を 5 秒間露光して、表面電位が半分(+300 V)になるまでに要する露光量を感度 $E_{1/2}$ (μ J/c m 2)として求め、露光後 5 秒後の表面電位を残留電位 V_r (V) として求めた。これらの評価結果を下記の表 1 中に示す。

[0039]

【表1】

	保持率V _{k5} (%)	感度E _{1/2} (μJ/cm²)	残留電位V _r (V)
感光体応用例1	84.7	0.22	3 4
感光体応用例2	79.8	0.32	4 5

[0040]

また、実際の印字による耐久性の評価として、ドラム状感光体をブラザー工業 (株) 製 レーザープリンターHL-1850に装着し、温度25℃、湿度48 %の環境下で、黒ベタ画像、白ベタ画像、ハーフトーン画像を印刷した。続いて 、印字率約5%の画像を5千枚印刷し、その後再び、黒ベタ画像、白ベタ画像、 ハーフトーン画像を印刷して、5千枚印字後の画像の評価を行った。

[0041]

結果として、感光体応用例1、2の感光体においては、初期画像および5千枚後の画像の双方において、良好な画像が得られた。

[0042]

【発明の効果】

以上説明してきたように、本発明によれば、電子輸送性に優れた化合物を得ることができ、この化合物を電子写真用感光体や有機ELなどの有機化合物を用いた電子デバイスに用いることにより、電気特性や発光効率等の特性を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

構造式(I-3)で示される化合物のIRスペクトルである。

【図2】

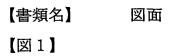
構造式 (I-3) で示される化合物の $^{1}H-NMR$ スペクトルである。

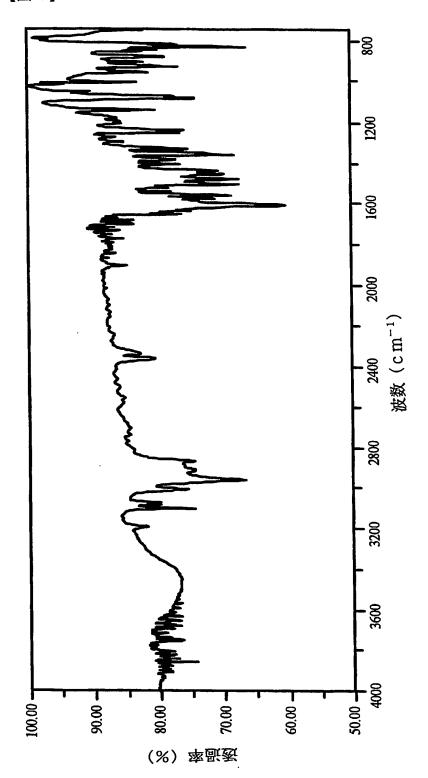
図3】

構造式(I-83)で示される化合物のIRスペクトルである。

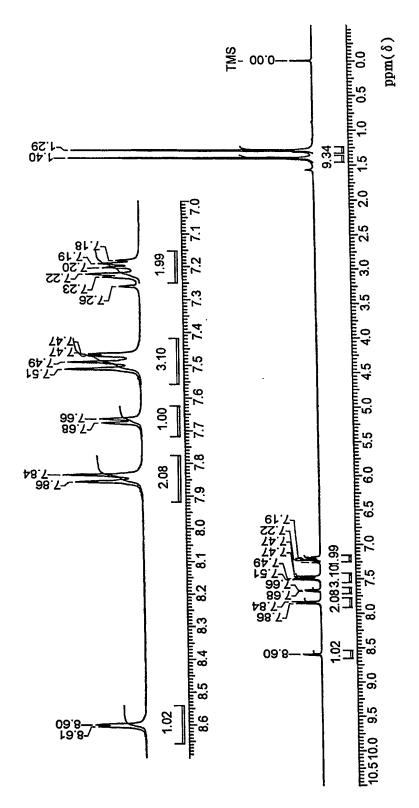
【図4】

構造式(I-83)で示される化合物の $^{1}H-NMRスペクトルである。$

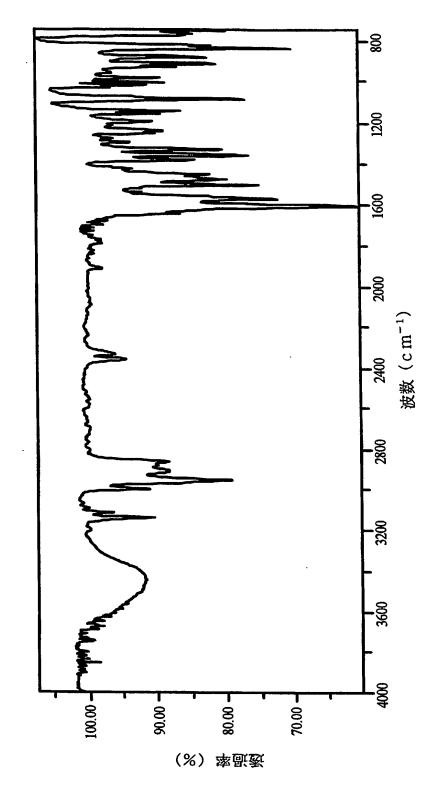




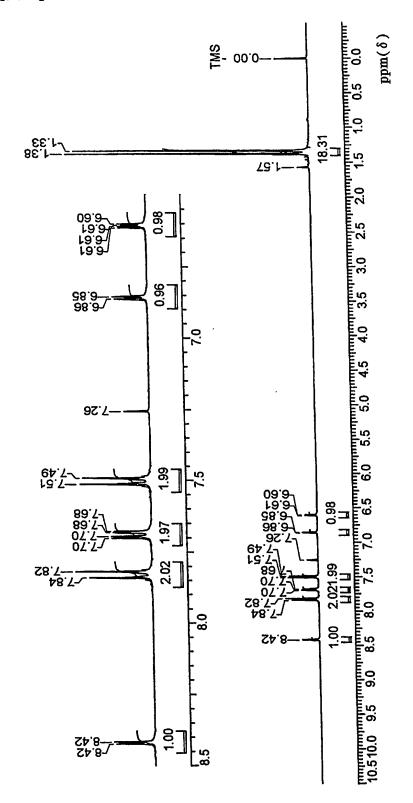












【書類名】

要約書

【要約】

【課題】 電子写真用感光体や有機EL用途に有用な電子輸送機能に優れた化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式(I)、

$$\begin{array}{c}
R^{1} \quad R^{3} \\
N=N-R^{5}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
X \\
X \\
(R^{6})_{n}
\end{array}$$

(式(I)中、R 1 、R 2 、R 3 、R 4 は、同一または異なって、水素原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、R 5 は、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、R 6 は、ハロゲン原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいアリール基または置換基を有してもよい複素環基を表し、Xは、硫黄原子または酸素原子を表し、nは0~3の整数を表し、置換基は、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、炭素数1~6のハロゲン化アルキル基、ニトロ基、アリール基または複素環基を表す)で表される構造を有するキノン系化合物である。

【選択図】 なし

ページ: 1/E

認定・付加情報

特許出願の番号 特願2003-187541

受付番号 50301089574

書類名 特許願

担当官 第二担当上席 0091

作成日 平成15年 7月 1日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成15年 6月30日

特願2003-187541

出願人履歷情報

識別番号

[399045008]

1. 変更年月日

1999年 7月19日

[変更理由]

新規登録

住 所 氏 名 長野県松本市筑摩四丁目18番1号

富士電機画像デバイス株式会社